

## 明 細 書

## 容器詰飲料

## 技術分野

- [0001] 本発明は低カフェイン緑茶抽出物を配合した容器詰飲料及び該低カフェイン緑茶抽出物の製造方法に関する。

## 背景技術

- [0002] カテキン類はコレステロール上昇抑制作用や $\alpha$ -アミラーゼ活性阻害作用等を有することが知られている(特許文献1-2)。カテキン類のこのような生理効果を発現させるには、成人一日あたり4-5杯のお茶を飲むことが必要である。このため、より簡便に大量のカテキン類を摂取できるよう、飲料にカテキン類を高濃度に配合する技術が望まれている。この方法の一つとして、緑茶抽出物の濃縮物(特許文献3)などを利用して、カテキン類を飲料に溶解状態で添加する方法がある。
- [0003] 緑茶又は半発酵、発酵茶葉から安定した風味を有するカテキン類の抽出方法として、低温水で抽出を行い、昇温して再度抽出する2段抽出法や、強酸性下での抽出方法が知られている(特許文献4-6)。しかしながら、これらの抽出方法は、茶葉からのカテキン抽出に限定されたものであり、精製物の風味の安定化、良好な風味の維持のみを目的としたものであった。
- また、カテキン類は一般に有機溶媒に難溶性であることが知られており、弱酸性域において抽出を促進できることが知られている。しかし、有機溶媒の割合が高くなるとカテキン類の抽出効率が著しく低下する等の問題があった(特許文献7)。
- [0004] 一方、茶葉中にはカテキン類が約15重量%含まれているものの、カフェイン成分も通常2-4重量%含まれている。カフェインは中枢神経興奮作用を示すことから、眠気抑制に使用されている反面、過剰摂取による神経過敏、吐き気、不眠等の有害作用を引き起こす原因にもなるといわれている。このため、カフェイン含有組成物から、カフェインのみを選択的に除去する方法が検討されてきた。
- [0005] 例えば、カフェインを含有する水溶液を活性白土又は酸性白土と接触させることにより選択的にカフェインを除去する方法(特許文献8)が提案されている。しかしながら

、この方法は、活性白土又は酸性白土を使用するだけで選択的にカフェインを除去できるが、色相が悪化する場合がある等の問題もあった。

特許文献1:特開昭60-156614号公報

特許文献2:特開平3-133928号公報

特許文献3:特開昭59-219384号公報

特許文献4:特開2003-219799号公報

特許文献5:特開2003-219800号公報

特許文献6:特開2003-225053号公報

特許文献7:特開2004-147508号公報

特許文献8:特開平6-142405号公報

[0006] 本発明は、緑茶抽出物を、有機溶媒と水の重量比が91/9-97/3の混合溶液と、活性炭及び酸性白土又は活性白土とを接触させる方法によって得られた低カフェイン緑茶抽出物を配合した、非重合体カテキン類を0.03-1.0重量%含有する容器詰飲料を提供するものである。

[0007] また、本発明は、緑茶抽出物を、有機溶媒と水の重量比が91/9-97/3の混合溶液と、活性炭及び酸性白土又は活性白土とを接触させて、抽出物の乾燥重量で非重合体カテキン類を25-90重量%含有する低カフェイン緑茶抽出物の製造方法を提供するものである。

[0008] また、本発明は、低カフェイン緑茶抽出物の固形分中で、非重合体カテキン類を40-90重量%含有し、非重合体カテキン類/カフェイン重量比が25-200である低カフェイン緑茶抽出物を提供するものである。

[0009] また、本発明は、緑茶抽出物を、有機溶媒と水の重量比が91/9-97/3の混合溶液に分散させ、活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触させて、カフェイン含有カテキン類組成物から選択的にカフェインを除去する方法を提供するものである。

#### 発明の実施の形態

[0010] 本発明は、緑茶抽出物中のカフェインを、カテキン類組成を著しく変化させることなく、しかも色相を悪化させずに、選択的に除去する手段、その手段によって製造された低カフェイン緑茶抽出物及び該低カフェイン緑茶抽出物を配合した容器詰飲料、

特に容器詰非茶系飲料に関する。

[0011] また、本発明は、緑茶抽出物中のカフェインを、カテキン類組成を著しく変化させることなく、しかも色相を悪化させずに、選択的に除去する方法に関する。

[0012] 本発明者は、緑茶抽出物を、エタノールと水の重量比が91/9-97/3の混合溶液と、活性炭と酸性白土又は活性白土とを接触させることにより、カテキン類組成を著しく変化させることなく、しかも色相を悪化させずに、選択的にカフェインを除去した精製緑茶抽出物である低カフェイン緑茶抽出物が得られ、該低カフェイン緑茶抽出物が特に高濃度カテキン類配合飲料の中でも非茶系容器詰飲料において風味が良好であることを見出した。

[0013] 本発明によれば、緑茶抽出物中のカフェインを、カテキン類組成を著しく変化させることなく、しかも色相を悪化させずに、選択的に除去でき、非重合体カテキン類を効率よく抽出することができる。更に、得られた低カフェイン緑茶抽出物を配合すればカフェイン含量が低く、高濃度のカテキン類を含有し、かつ色相及び風味の良好な容器詰飲料が得られる。

[0014] 本発明で用いる緑茶抽出物は、非重合体カテキンを1種以上含有するものである。本発明において非重合体カテキン類とは、カテキン、ガロカテキン、カテキンガレート、ガロカテキンガレート等の非エピ体カテキン類及びエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート、エピガロカテキンガレート等のエピ体カテキン類をあわせての総称である。またガレート体とは、上記非重合体カテキン類中のカテキンガレート、ガロカテキンガレート、エピカテキンガレート、エピガロカテキンガレートをあわせての総称である。またガロ体とは、上記非重合体カテキン類中のガロカテキン、ガロカテキンガレート、エピガロカテキン、エピガロカテキンガレートをあわせての総称である。ガロ体率は、これらの比重合体カテキン類中のガロ体の重量比である。

[0015] 本発明において用いられる緑茶抽出物としては、緑茶、紅茶、烏龍茶等の茶葉から得られた抽出液が挙げられる。その他のカフェイン含有植物由来、例えばコーヒー等のカフェインと茶抽出液の混合物等も用いることができる。このような非重合体カテキン類を含有する緑茶抽出物としては、緑茶の茶葉から得られた抽出液を乾燥又は濃縮したもの等が好ましい。

[0016] ここで使用する茶葉は、より具体的には、Camellia属、例えばC. sinensis、C. assamica及びやぶきた種又はそれらの雑種等から得られる茶葉から製茶された茶葉が挙げられる。製茶された茶葉には、煎茶、番茶、玉露、てん茶、釜炒り茶等の緑茶類がある。

茶葉抽出物は、攪拌抽出等の方法により得ることができる。抽出の際、水にあらかじめアスコルビン酸ナトリウム等の有機酸又は有機酸塩類を添加しても良い。また、煮沸脱気や窒素ガス等の不活性ガスを通気して溶存酸素を除去しつつ、いわゆる非酸化的雰囲気下で抽出する方法を併用してもよい。このようにして得られた抽出液を乾燥し、本発明に使用する緑茶抽出物を得る。緑茶抽出物の形態としては、液体、スラリー、半固体、固体の状態が挙げられる。エタノール中での分散性の観点から、スラリー、半固体、固体の状態が好ましい。

[0017] 本発明に使用する緑茶抽出物には茶葉から抽出した抽出液を乾燥して使用する代わりに、茶抽出物の濃縮物を水に溶解あるいは希釈して用いても、茶葉からの抽出液と茶抽出物の濃縮物とを併用してもよい。

ここで、茶抽出物の濃縮物とは、茶葉から熱水又は水溶性有機溶媒により抽出された抽出物を濃縮したものであり、例えば、特開昭59-219384号公報、特開平4-20589号公報、特開平5-260907号公報、特開平5-306279号公報等に記載されている方法により調製したものをいう。

具体的には、緑茶抽出物として、市販の東京フードテクノ社製「ポリフェノン」、伊藤園社製「テアフラン」、太陽化学社製「サンフェノン」等の粗カテキン製剤を、固体の粗カテキン製剤として用いることもできる。

[0018] 当該緑茶抽出物としては、超臨界状態の二酸化炭素接触処理を施したCamellia属に属する茶葉を用いて抽出した抽出物を用いてもよい。臨界抽出に用いる茶葉は、Camellia属に属していればよく、生茶でも製茶された茶葉でもよい。当該製茶された茶葉としては不発酵茶が特に好ましい。例えば、蒸し製茶葉では普通煎茶、深蒸し煎茶、玉露、かぶせ茶、玉緑茶、番茶などが好ましい。また釜炒り製では玉緑茶や中国緑茶がある。製茶された茶葉は蒸し製茶葉或いは湯通し(ディッピング)の方が釜入りで発生する茶葉由来の新たな香味が発生するのを抑える意味で好ましい。

- [0019] この方法においては、超臨界抽出を施した残渣である茶葉から非重合体カテキン類を含有する抽出物を得るものである。従来、茶葉から超臨界抽出により香気成分を得ようとする技術はいくつかが存在する(特開2001-293076号、特開平10-77496号、特開平6-133726号、特開平6-184591号)。しかし、これらの技術は、いずれも茶葉の超臨界抽出物を利用する技術であり、超臨界抽出の残渣茶葉を利用する技術及び当該残渣茶葉にどのような成分が残っているかについては何も記載されていない。
- [0020] 超臨界状態の二酸化炭素接触処理を施したCamellia属の茶葉から抽出した茶抽出物の製造法は、具体的には、緑茶葉の湿潤工程ステップ(A)、超臨界状態の二酸化炭素による処理工程(B)、茶葉からの緑茶抽出物の抽出工程(C)からなる。以下、各ステップ毎に説明する。
- [0021] まず、ステップ(A)では、前記緑茶葉1重量部に対してエタノール:水=75:25〜99.5:0.5の混合溶液を0.2〜0.4重量部添加して緑茶葉を湿潤させる。この緑茶葉のエタノール:水=75:25〜99.5:0.5の混合溶液による湿潤工程がないと、ステップ(B)による緑茶フレーバーの除去が十分に行われぬ。また、添加するエタノール:水=75:25〜99.5:0.5の混合溶液は、緑茶フレーバー除去効果、抽出効率の点から前記緑茶葉1重量部に対して0.2〜0.4重量部添加するのが好ましい。また、エタノールと水の混合溶液の比率は、エタノール:水=75:25〜99.5:0.5、さらに80:20〜99.5:0.5、さらに80:20〜90:10が好ましい。また、エタノールと水の混合溶液の添加量は、0.2〜0.4重量部、さらに0.3〜0.4重量部が好ましい。
- 前記所定量のエタノールと水の混合溶液を添加した緑茶葉は、十分に湿潤させるため、0〜100℃に0.5時間以上静置するのが好ましい。
- [0022] ステップ(B)では、エタノール:水=75:25〜99.5:0.5の混合溶液を0.02〜0.04重量部添加した超臨界状態の二酸化炭素を、湿潤した緑茶葉に対して接触させるのが好ましい。ステップ(B)によれば、緑茶葉中の含水量を一定に保持できるため、緑茶葉中の緑茶フレーバーが効率良く除去される。一方、このとき緑茶中のカテキン類は、ほぼ完全に緑茶葉中に残留し、本操作により損なわれることはない。

[0023] 用いられるエタノールと水の混合溶液の比率は、エタノール：水＝75：25～99.5：0.5、さらに75：25～95：5、さらに80：20～90：10が好ましい。また、エタノールと水の混合溶液の添加量は、二酸化炭素1重量部に対して0.02～0.04重量部、さらに0.03～0.04重量部が好ましい。

[0024] 用いられる二酸化炭素は、超臨界状態(圧力7MPa以上、温度31℃以上)にある二酸化炭素であれば効率よく緑茶フレーバー成分の除去を行なうことができるが、苦味成分及び緑茶フレーバーの除去効率の点から20～50MPa、35～100℃、特に30～40MPa、60～80℃の二酸化炭素が好ましい。また、二酸化炭素の使用量は緑茶葉1重量部に対して20重量部以上、さらに20～250重量部、特に50～150重量部が好ましい。

[0025] エタノール及び／又は水と超臨界状態の二酸化炭素とは、同時に緑茶葉に接触させるのが好ましい。例えば、エタノール水溶液と超臨界状態の二酸化炭素とを同時に緑茶葉に接触させてもよいし、予めエタノール水溶液と超臨界状態の二酸化炭素を混合してから緑茶葉に接触させてもよい。緑茶葉にエタノール及び／又は水と超臨界状態の二酸化炭素を接触させるには、通常の超臨界抽出装置を用いるのが好ましい。前記接触は、装置の容量によっても異なるが、茶葉中の水分量を保持するため、通常緑茶葉1重量部に対して、超臨界状態の二酸化炭素を10～25重量部/hの速度で行うのが好ましい。

[0026] ステップ(C)では、前記超臨界状態の二酸化炭素接触後の緑茶葉から、緑茶葉1重量部に対して10～150重量部の水を用いて抽出するのが好ましい。用いる水の量はさらに20～100重量部、特に20～50重量部が、カテキンを初めとする水溶性成分の抽出効率を最大にするため、好ましい。

[0027] ステップ(C)の抽出は、通常の抽出条件で行われる。緑茶葉からの抽出時の温度は抽出する茶葉種によって適宜変更できる。例えば煎茶や玉露茶であれば60～90℃が好ましく、玉露やかぶせ茶では50～60℃程度が良い。また番茶では90℃～沸騰水を使用できる。緑茶葉からの抽出時間は1～60分が好ましく、より好ましくは1～40分、さらに好ましくは1～30分である。例えば、普通煎茶葉を用いた抽出液の製造法の場合は65℃に加温したイオン交換水に茶葉を投入し、2分程度攪拌後、同じく2

分程度の静置後、フィルターにより茶葉を除去し、ネル濾布により微細な茶葉を除去して得ることもできる。

[0028] 本発明に用いる緑茶抽出物としては、乾燥重量で非重合体カテキン類を25〜90重量%、更に25〜70重量%、更に40〜70重量%含有する緑茶抽出物を用いるのが、非重合体カテキン類以外の呈味成分が残っているために好ましい。

[0029] このようにして得られた緑茶抽出物は、有機溶媒と水の重量比が91/9〜97/3の混合溶液と、並びに活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触させる方法によって精製して、低カフェイン緑茶抽出物が製造される。

[0030] 本発明の低カフェイン緑茶抽出物の製造に用いる有機溶媒としては、エタノール、メタノール、アセトン、酢酸エチル等が挙げられる。これらのうち、メタノール、エタノール、アセトンの親水性有機溶媒が好ましく、特に食品への使用を考慮すると、エタノールが好ましい。

[0031] 本発明の低カフェイン緑茶抽出物の製造に用いる有機溶媒と水は、重量比を91/9〜97/3、更に92/8〜96/4、更に92/8〜95/5の範囲に調整するのが好ましい。カテキン類の抽出効率、緑茶抽出物の精製、長期間の飲用性及び回収有機溶媒の精留条件等の点でこの範囲にあるのが好ましい。

[0032] 本発明においては、有機溶媒と水の混合溶液100重量部に対して、緑茶抽出物(乾燥重量換算)を10〜40重量部、更に10〜30重量部、特に15〜30重量部添加して処理するのが、緑茶抽出物を効率良く処理できるので好ましい。

[0033] 本発明で用いる活性炭としては、一般に工業レベルで使用されているものであれば特に制限されず、例えば、ZN-50(北越炭素社製)、クラレコールGLC、クラレコールPK-D、クラレコールPW-D(クラレケミカル社製)、白鷺AW50、白鷺A、白鷺M、白鷺C(武田薬品工業社製)等の市販品を用いることができる。

活性炭の細孔容積は0.01〜0.8mL/g、特に0.1〜0.7mL/gが好ましい。また、比表面積は800〜1300m<sup>2</sup>/g、特に900〜1200m<sup>2</sup>/gの範囲のものが好ましい。なお、これらの物性値は窒素吸着法に基づく値である。

[0034] 活性炭は、有機溶媒と水の混合溶液100重量部に対して0.5〜5重量部、特に0.5〜3重量部添加するのが、カフェイン除去効率、ろ過工程におけるケーキ抵抗が小

さい点で好ましい。

- [0035] 本発明で用いる酸性白土又は活性白土は、ともに一般的な化学成分として、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{MgO}$ 等を含有するものであるが、 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 比が3～12、特に4～9であるのが好ましい。また $\text{Fe}_2\text{O}_3$ を2～5重量%、 $\text{CaO}$ を0～1.5重量%、 $\text{MgO}$ を1～7重量%含有する組成のものが好ましい。

活性白土は天然に産出する酸性白土(モンモリロナイト系粘土)を硫酸等の鉱酸で処理したものであり、大きい比表面積と吸着能を有する多孔質構造をもった化合物である。酸性白土を更に、酸処理することにより比表面積が変化し、脱色能の改良及び物性が変化することが知られている。

- [0036] 酸性白土又は活性白土の比表面積は、酸処理の程度等により異なるが、50～350  $\text{m}^2/\text{g}$ であるのが好ましく、pH(5重量%サスペンション)は2.5～8、特に3.6～7のものが好ましい。例えば、酸性白土としては、ミズカエース#600(水澤化学社製)等の市販品を用いることができる。

- [0037] また、活性炭と、酸性白土又は活性白土の割合は、重量比で活性炭1に対して1～10が良く、活性炭:酸性白土又は活性白土=1:1～1:6であるのが好ましい。

- [0038] 本発明の低カフェイン緑茶抽出物の製造方法としては、(イ)緑茶抽出物を、有機溶媒と水との混合溶液に溶解させ、活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触する方法、又は(ロ)有機溶媒と水の混合溶液に、活性炭及び酸性白土又は活性白土を分散させた分散液と、緑茶抽出物とを接触処理する方法が好ましい。ここで、原料緑茶抽出物としては、前記の超臨界抽出により得られたものも用いられる。

また、緑茶抽出物と活性炭及び酸性白土又は活性白土との接触の順序は特に限定されない。活性炭と酸性白土又は活性白土を同時に接触させてもよく、また、先ず緑茶抽出物と酸性白土又は活性白土を接触させ、次いで活性炭と接触させてもよい。

- [0039] 緑茶抽出物と酸性白土又は活性白土が接触するときのpHを4～6の範囲に調整して行うことが、非重合体カテキン類を効率よく抽出した精製緑茶抽出物を得るために好ましい。接触の際、クエン酸、乳酸、酒石酸、コハク酸、リンゴ酸等の有機酸を、有機酸と非重合体カテキン類の重量比率(有機酸/非重合体カテキン類)が0.02～0



。20の範囲で添加するのが好ましい。

- [0040] 緑茶抽出物を、有機溶媒と水との混合溶液に分散させ、次いで活性炭及び酸性白土又は活性白土で接触処理して低カフェイン緑茶抽出物を製造する場合、緑茶抽出物を有機溶媒と水の混合溶液に溶解する方法は特に制限されず、カフェイン含有カテキン類組成物を最終的に処理する際の有機溶媒と水の重量比が91/9-97/3の範囲になっていれば良い。例えば、緑茶抽出物を水に溶解した後に有機溶媒を添加していくことによって有機溶媒と水の重量比を91/9-97/3の範囲にしても良く、緑茶抽出物を有機溶媒に懸濁させた後、徐々に水を添加して同様の比率としても良い。抽出効率の点から、水に溶解後に有機溶媒を添加していく方法が好ましい。
- [0041] 水又は有機溶媒の必要量の添加時間は10-30分程度の時間でゆっくり滴下するのが好ましい。また、カテキン類の抽出効率を上げるために攪拌状態で滴下するのが好ましい。水の滴下終了後は10-120分程度の熟成時間を設けると更に好ましい。
- 。これらの処理は、10-60℃で行うことができ、特に10-50℃、更に10-40℃で行うのが好ましい。
- [0042] 酸性白土又は活性白土は、有機溶媒と水の混合溶液100重量部に対して2.5-25重量部、特に2.5-15重量部添加するのが好ましい。酸性白土又は活性白土の添加量が少なすぎると、カフェイン除去効率が悪くなり、また多すぎるとろ過工程におけるケーキ抵抗が大きくなり好ましくない。
- [0043] 更に、本発明において、緑茶抽出物を、酸性白土又は活性白土と有機溶媒と水の混合溶液との分散液と接触混合する場合、酸性白土又は活性白土と緑茶抽出物との混合重量比率は、酸性白土又は活性白土/非重合体カテキン類の値が0.9-5.0、更に1.5-3.0であるのが好ましい。酸性白土又は活性白土の添加量が少なすぎるとカフェイン除去効率が悪くなり、また多すぎるとろ過工程におけるケーキ抵抗が大きくなり好ましくない。
- [0044] 前記分散液に緑茶抽出物を接触させる液の温度は、始めに10-30℃とし、その後40-60℃に昇温すると、緑茶抽出物の溶解が促進されるという点及び分散液へのカテキン抽出効率が促進されるという点で好ましい。

- [0045] 更に前記分散液に緑茶抽出物を接触させた後、更に活性炭と接触させる。好ましくは、緑茶抽出物と前記分散液とを先ず接触混合処理し、次いでろ過し、ろ液部分を活性炭と接触処理するのがよい。
- [0046] 緑茶抽出物と活性炭及び酸性白土又は活性白土との接触処理は、バッチ式、カラムによる連続処理等のいずれの方法で行ってもよい。また、緑茶抽出物と活性炭との接触方法は、活性炭カラムによる連続処理等の方法で行うことがよい。一般には、粉末状の活性炭等を添加、攪拌し、カフェインを選択的に吸着後、ろ過操作によりカフェインを選択的に吸着後、ろ過操作によりカフェインを除去したろ液を得る方法又は顆粒状の活性炭等を充填したカラムを用いて連続処理によりカフェインを選択的に吸着する方法等が採用される。
- [0047] 緑茶抽出物と活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触させた後の緑茶抽出物の混合溶液は、混合溶液からエタノール等の有機溶媒を取り除くべく減圧蒸留等の方法を用いて留去される。また処理後の緑茶抽出物は液状でも固体状でもいずれでも良いが、固体状態を調製する場合には凍結乾燥やスプレードライ等の方法によって粉末化してもよい。
- [0048] 本発明により脱カフェイン処理を行った後の精製緑茶抽出物(低カフェイン緑茶抽出物)は、含有する非重合体カテキン類の組成が処理前と本質的に変化していないのが好ましい。処理前後の有機溶媒と水の混合溶液中の非重合体カテキン類の収率は60重量%以上、更に65重量%以上、更に70重量%以上、特に80重量%以上が好ましい。
- [0049] また、低カフェイン緑茶抽出物中のカテキングレート、エピカテキングレート、ガロカテキングレート及びエピガロカテキングレートからなるガレート体の全非重合体カテキン類中での割合は、45〜100重量%、更に50〜98重量%であるのが、非重合体カテキン類の生理効果の有効性上好ましい。
- [0050] 低カフェイン緑茶抽出物中のカフェイン濃度は、非重合体カテキン類に対して非重合体カテキン類／カフェイン＝25〜200、更に30〜150、更に30〜100、特に30〜60であるのが好ましい。
- [0051] 低カフェイン緑茶抽出物の固形分中で、非重合体カテキン類を25〜90重量%、更

に30〜90重量%、更にまた35〜90重量%含有するのが好ましい。

更に、低カフェイン緑茶抽出物の固形分中で、遊離アミノ酸とタンパク質を合計量で0〜5.0重量%含有するのが好ましく、非重合体カテキン類と遊離アミノ酸及びタンパク質の合計量との重量比率(非重合体カテキン類/(遊離アミノ酸+タンパク質))が15〜25であるのが好ましい。

[0052] 得られた低カフェイン緑茶抽出物は、カフェイン濃度が低いにもかかわらず、高い非重合体カテキン類濃度を維持しており、かつ色相がよく、更に緑茶の風味がほとんどない。従って、低カフェイン緑茶抽出物を配合した容器詰飲料は、特にスポーツ飲料、アイソトニック飲料等の非茶系飲料として有用である。

[0053] 本発明の容器詰飲料中には、水に溶解状態にある(A)非重合体カテキン類を、0.03〜1.0重量%含有するが、好ましくは0.04〜0.5重量%、より好ましくは0.06〜0.4重量%、更に好ましくは0.07〜0.4重量%、特に好ましくは0.08〜0.3重量%、殊更好ましくは0.09〜0.3重量%、もっとも好ましくは0.1〜0.3重量%含有する。非重合体カテキン類含量がこの範囲にあると、多量の非重合体カテキン類を容易に取り易く、飲料調製直後の色調の点からも好ましい。当該非重合体カテキン類の濃度は、緑茶抽出物の配合量によって調整することができる。

また、蓄積体脂肪燃焼促進、食事性脂肪燃焼促進及び肝臓 $\beta$ 酸化遺伝子発現促進の効果を出すための成人一日当りの摂取量としては、非重合体カテキン類として300mg以上、更に450mg以上、更に500mg以上が好ましい。また具体的には一本あたり非重合体カテキン類を483mg、555mg及び900mgを含有する飲料の摂取によって抗肥満効果や内臓脂肪低減効果が確認されている(特開2002-326932号公報)。

したがって本発明の容器詰飲料においても成人一日当りの摂取量としては、非重合体カテキン類として300mg以上、更に450mg以上、更に500mg以上が好ましく、一日当りの必要摂取量を確保する意味からも、本発明の容器詰飲料1本当たり300mg以上、更に450mg以上、更に500mg以上の配合量があるものが好ましい。

[0054] 本発明の容器詰飲料における非重合体カテキン類とカフェインとの含有重量比は25〜200、更に30〜200、更に30〜150、特に30〜100が好ましい。

- [0055] 本発明の容器詰飲料には、ナトリウムイオン及び／又はカリウムイオンを含有させても良い。これらのイオンを含有させた本発明飲料は、スポーツドリンク、アイソトニック飲料等の飲料形態として有用である。スポーツドリンクとは、身体運動後に汗として失われる水分、ミネラルを速やかに補給できる飲料であるとして一般的に規定される。
- [0056] 主な生理電解質の中にはナトリウム及びカリウムがある。これらのイオン成分はそれらに対応する水溶性成分ないし、無機塩を添加することで含有させることができる。それらは果汁及び茶抽出物中にも存在する。本発明飲料中における電解質又はイオン成分の量は最終の飲用しうる容器詰飲料中の含有量である。電解質濃度はイオン濃度で示される。カリウムイオン成分は、カリウム塩化物、炭酸カリウム、硫酸カリウム、酢酸カリウム、炭酸水素カリウム、クエン酸カリウム、リン酸カリウム、リン酸水素カリウム、酒石酸カリウム、ソルビン酸カリウム等又はそれらの混合物のような塩として、あるいは加えられた果汁又は茶の成分として本発明飲料に配合できる。カリウムイオンは、0.001〜0.2重量%、更に0.002〜0.15重量%、更に0.003〜0.12重量%本発明の容器詰飲料中に含有することが好ましい。同様に、ナトリウムイオン成分は、ナトリウム塩化物、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、クエン酸ナトリウム、リン酸ナトリウム、リン酸水素ナトリウム、酒石酸ナトリウム、安息香酸ナトリウム等及びそれらの混合物のような容易に入手しうるナトリウム塩として、あるいは加えられた果汁又は茶の成分として配合できる。ナトリウム濃度は浸透圧による水の吸収を容易にさせる上で低い方望ましいが、体から腸に水を浸透圧吸引しない程度であることが、好ましい。これを行うために必要なナトリウムの濃度は、血漿ナトリウムの場合よりも低いことが好ましい。ナトリウムイオンは、0.001〜0.5重量%、更に0.002〜0.4重量%、更に0.003〜0.2重量%本発明の容器詰飲料中に含有するのが好ましい。カリウム及びナトリウムイオンに加えて、本発明容器詰飲料には0.001〜0.5重量%、好ましくは0.002〜0.4重量%、最も好ましくは0.003〜0.3重量%の塩化物イオンを更に含有させることができる。塩化物イオン成分は塩化ナトリウム又は塩化カリウムのような塩の形態で配合できる。カルシウム及びマグネシウム、亜鉛、鉄のような他の微量イオンも配合してよい。これらのイオンも塩として配合してよい。飲料中に存在するイオンの合計量には、添加されたイオン量と共に、飲料中に天然で存在するイオン量を

含む。例えば、塩化ナトリウムが添加された場合、その量のナトリウムイオン及びその量の塩化物イオンも、それに応じて各イオンの合計量に含まれる。

ここで、ナトリウムイオンやカリウムイオン濃度が低すぎると、飲む場面によっては味的に物足りなく感じ、効果的なミネラル補給ができなくて好ましくない。一方、多すぎると、塩類自体の味が強くなり長期間の飲用に好ましくない。

[0057] 本発明の容器詰飲料には、味を改善する目的で、甘味料が用いられる。甘味料としては人工甘味料類、炭水化物類、グリセロール類(例えばグリセリン)が用いられる。これらの甘味料は、本発明容器詰飲料中に0.0001〜20重量%、更に0.001〜15重量%、更に0.001〜10重量%含有するのが、甘みと酸味、塩味とのバランス、甘すぎず喉にひっかかる感覚が弱く、喉越しの点で好ましい。

本発明の容器詰飲料における甘味料としては、人工甘味料を使用することが好ましい。本発明で利用できる人工甘味料の例にはサッカリン及びサッカリンナトリウム、アスパルテーム、アセサルフェーム-K、スクラロース、ネオテーム等の高甘度甘味料、ソルビトール、エリスリトール、キシリトール等の糖アルコールを使用できる。商品としては、アスパルテームからなるスリムアップシュガー、エリスリトールを含んだラカントS、エリスリトールとアスパルテームからなるパルスweet等を使用できる。

[0058] 目的とする容器詰飲料がエネルギー補給を兼ね備える場合には、炭水化物類の甘味料を使用する方が好ましい。

本発明で利用できる炭水化物類甘味料としては可溶性炭水化物が用いられる。可溶性炭水化物には、甘味料とエネルギー源との役割がある。本発明飲料に使用する炭水化物を選択するにあたっては、十分な胃排出及び腸吸収速度を考慮することが好ましい。

[0059] 炭水化物はグルコース及びフルクトースの混合物でも、あるいは消化管で加水分解するか又はグルコース及びフルクトースを形成する炭水化物であってもよい。本明細書で用いられる「炭水化物」という用語は、単糖、二糖、オリゴ糖、複合多糖及びそれらの混合物を含む。

[0060] ここで使用できる単糖にはテトロース、ペントース、ヘキソース及びケトヘキソースがある。ヘキソースの例は、ブドウ糖として知られるグルコースのようなアルドヘキソース

である。本発明の容器詰飲料中のグルコースの量は、0.0001〜20重量%、更に0.001〜15重量%、更に0.001〜10重量%であるのが好ましい。果糖として知られるフルクトースはケトヘキソースである。本発明容器詰飲料中のフルクトースの量は0.0001〜20重量%、更に0.001〜15重量%、特に0.001〜10重量%であるのが好ましい。

本発明飲料中においては、人工甘味料単独系、人工甘味料とグルコース系化合物、もしくは人工甘味料とフルクトース系化合物の組み合わせが好ましい。

[0061] 本発明で利用できる炭水化物類甘味料としては可溶性炭水化物が用いられるが、オリゴ糖としては、これら2種の単糖を体内で生成する炭水化物(即ち、スクロース、マルトデキストリン、コーンシロップ、高フルクトースコーンシロップ)が挙げられる。この糖の重要なタイプは二糖である。二糖の例は、ショ糖又はテンサイ糖として知られるスクロースである。本発明容器詰飲料中のスクロースの量は、0.001〜20重量%、更に0.001〜15重量%、特に0.001〜10重量%であるのが好ましい。

[0062] 本発明の容器詰飲料のpHは2〜6、更に2〜5、更に3〜4.5がカテキンの安定性上好ましい。pHが低すぎると飲料の酸味、刺激臭が強くなる。また、pHが高すぎると風味の調和が取れなくなり、嗜好性が低下するので好ましくない。

[0063] 本発明の容器詰飲料は、苦渋味抑制剤を配合すると飲用しやすくなり好ましい。用いる苦渋味抑制剤は特に限定はないが、サイクロデキストリンが好ましい。サイクロデキストリンとしては、 $\alpha$ -、 $\beta$ -、 $\gamma$ -サイクロデキストリン及び分岐 $\alpha$ -、 $\beta$ -、 $\gamma$ -サイクロデキストリンが使用できる。サイクロデキストリンは飲料中に0.005〜0.5重量%、更に0.01〜0.3重量%含有するのが好ましい。本発明の容器詰飲料には、酸化防止剤、香料、各種エステル類、有機酸類、有機酸塩類、無機酸類、無機酸塩類、無機塩類、色素類、乳化剤、保存料、調味料、甘味料、酸味料、ガム、乳化剤、油、ビタミン、アミノ酸、果汁エキス類、野菜エキス類、花蜜エキス類、pH調整剤、品質安定剤等の添加剤を単独、あるいは併用して配合できる。

[0064] 香料や果汁は嗜好性を高めるために本発明の飲料に配合されるのが好ましい。一般に果汁のことをフルーツジュース、香料のことをフレーバーと呼んでいる。天然又は合成香料や果汁が本発明で利用できる。これらはフルーツジュース、フルーツフレー

バー、植物フレーバー又はそれらの混合物から選択できる。特に、フルーツジュースと一緒に茶フレーバー、好ましくは緑茶又は黒茶フレーバーの組合せが魅力的な味を有している。好ましい果汁はリンゴ、ナシ、レモン、ライム、マンダリン、グレープフルーツ、クランベリー、オレンジ、ストロベリー、ブドウ、キウイ、パイナップル、パッションフルーツ、マンゴ、グアバ、ラズベリー及びチェリーである。シトラスジュース、好ましくはグレープフルーツ、オレンジ、レモン、ライム、マンダリンと、マンゴ、パッションフルーツ及びグアバのジュース、又はそれらの混合物が最も好ましい。好ましい天然フレーバーはジャスミン、カミツレ、バラ、ペパーミント、サンザシ、キク、ヒシ、サトウキビ、レイシ、タケノコ等である。果汁は本発明飲料中に0.001〜20重量%、更に0.002〜10重量%含有するのが好ましい。フルーツフレーバー、植物フレーバー、茶フレーバー及びそれらの混合物も果汁として使用できる。特に好ましい香料はオレンジフレーバー、レモンフレーバー、ライムフレーバー及びグレープフルーツフレーバーを含めたシトラスフレーバーである。シトラスフレーバー以外にも、リンゴフレーバー、ブドウフレーバー、ラズベリーフレーバー、クランベリーフレーバー、チェリーフレーバー、パイナップルフレーバー等のような様々な他のフルーツフレーバーが使用できる。これらのフレーバーはフルーツジュース及び香油のような天然源から誘導しても、又は合成してもよい。香味料には、様々なフレーバーのブレンド、例えばレモン及びライムフレーバー、シトラスフレーバーと選択されたスパイス等を含めることができる。このような香味料は本発明飲料に0.0001〜5重量%、更に0.001〜3重量%を配合されるのが好ましい。

- [0065] 更に必要により、本発明飲料は酸味料を含有していてもよい。酸味料としては、リンゴ酸、クエン酸、酒石酸、フマル酸等のような食用酸が挙げられる。酸味料は本発明飲料のpHを調整するために用いてもよい。本発明飲料のpHは2〜5であるのが好ましい。pH調整剤としては、有機及び無機の食用酸を用いることができる。酸はそれらの非解離形で、あるいはそれらの各塩、例えばリン酸水素カリウム又はナトリウム、リン酸二水素カリウム又はナトリウム塩のような形態で用いてもよい。好ましい酸は、クエン酸、リンゴ酸、フマル酸、アジピン酸、リン酸、グルコン酸、酒石酸、アスコルビン酸、酢酸、リン酸又はそれらの混合物を含めた食用有機酸である。最も好ましい酸はクエ

ン酸及びリンゴ酸である。酸味料は飲料成分を安定化させる酸化防止剤としても役立つ。また常用される酸化防止剤の例には、アスコルビン酸、EDTA(エチレンジアミン四酢酸)及びそれらの塩、植物抽出エキス等が配合できる。

[0066] 本発明飲料には、ビタミンを更に含有させることができる。好ましくは、ビタミンA、ビタミンC及びビタミンEが加えられる。ビタミンD及びビタミンBのような他のビタミンを加えてもよい。ミネラルも本発明の飲料に用いることができる。好ましいミネラルはカルシウム、クロム、銅、フッ素、ヨウ素、鉄、マグネシウム、マンガン、リン、セレン、ケイ素、モリブデン及び亜鉛である。特に好ましいミネラルはマグネシウム、リン及び鉄である。

[0067] 本発明の容器詰飲料に使用される容器は、一般の飲料と同様にポリエチレンテレフタレートを主成分とする成形容器(いわゆるPETボトル)、金属缶、金属箔やプラスチックフィルムと複合された紙容器、瓶等の通常の形態で提供することができる。ここでいう容器詰飲料とは希釈せずに飲用できるものをいう。

[0068] 本発明の容器詰飲料は、例えば、金属缶のように容器に充填後、加熱殺菌できる場合にあっては食品衛生法に定められた殺菌条件で製造されるが、PETボトル、紙容器のようにレトルト殺菌できないものについては、あらかじめ上記と同等の殺菌条件、例えばプレート式熱交換器等で高温短時間殺菌後、一定の温度迄冷却して容器に充填する等の方法が採用される。また無菌下で、充填された容器に別の成分を配合して充填してもよい。更に、酸性下で加熱殺菌後、無菌下でpHを中性に戻すことや、中性下で加熱殺菌後、無菌下でpHを酸性に戻す等の操作も可能である。

## 実施例

### [0069] カテキン類の測定

カテキン類組成物を蒸留水で希釈し、フィルター(0.8  $\mu$ m)でろ過後、島津製作所社製、高速液体クロマトグラフ(型式SCL-10AVP)を用い、オクタデシル基導入液体クロマトグラフ用パッキドカラム L-カラムTM ODS(4.6mm  $\phi$   $\times$  250mm:財団法人 化学物質評価研究機構製)を装着し、カラム温度35℃で、A液及びB液を用いたグラジエント法によって行った。移動相A液は酢酸を0.1mol/L含有の蒸留水溶液、B液は酢酸を0.1mol/L含有のアセトニトリル溶液とし、試料注入量は20  $\mu$



L、UV検出器波長は280nmの条件で行った。

[0070] カフェインの測定

(分析機器)

HPLC(日立製作所社製)装置を使用。

プロッター:D-2500, デTECTター:L-4200

ポンプ:L-7100, オートサンプラー:L-7200

カラム:Inertsil ODS-2、内径2.1mm×長さ250mm

(分析条件)

サンプル注入量:10 $\mu$ L, 流量:1.0mL/min

紫外線吸光光度計検出波長:280nm

溶離液A:0.1mol/L酢酸水溶液, 溶離液B:0.1mol/L酢酸アセトニトリル溶液

濃度勾配条件(体積%)

時間(分)	溶離液A	溶離液B
0	97	3
5	97	3
37	80	20
43	80	20
43.5	0	100
48.5	0	100
49	97	3
62	97	3

(カフェインのリテンションタイム)

カフェイン:27.2分

ここで求めたエリア%から標準物質により重量%を求めた。

[0071] 色相評価

(分析機器)

UV MINI1240(島津製作所社製)装置を使用。

分光光度計で450nmの吸光度における値を測定した。測定においては、精製緑茶抽出物をカテキン濃度100mg%になるようにイオン交換水で希釈し、そのサンプルを用いて吸光度を測定し、色相の指標とした。

#### 安定性の目視評価

精製緑茶抽出物をカテキン濃度100mg%になるようにイオン交換水で希釈し、50 mLバイアル瓶に入っている評価サンプルをイルミネーター上で内容物の状態を観察し、目視判定した。

#### [0072] タンパク質及び遊離アミノ酸の測定

(タンパク質＋遊離アミノ酸量)の計算式:

(精製緑茶抽出物中の全窒素－カフェイン態窒素)×換算係数

全窒素の定量法:

栄養表示基準(平成8年5月厚生省告示第146号)における栄養成分等の分析方法等(栄養表示基準別表第1の第3欄に掲げる方法)に準ずる窒素定量換算法(マクロ改良ケルダール法)により求める。

カフェイン態窒素:

前記カフェイン量の測定で求めたカフェイン量を、カフェイン分子量( $M_w=194$ )中の窒素分子量( $M_w=54$ )に換算することにより求める。

換算係数:

栄養表示基準(平成8年5月厚生省告示第146号)における栄養成分等の分析方法等(栄養表示基準別表第1の第3欄に掲げる方法)に準ずる換算係数(6.25)を用いる。

#### [0073] 実施例1 低カフェイン緑茶抽出物A

緑茶抽出物(ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製)200gを常温、250r/min攪拌条件下の95%エタノール水溶液800g中に分散させ、酸性白土ミズカエース#600(水澤化学社製)100gを投入後、約10分間攪拌を続けた。その後、2号ろ紙でろ過した。その後、活性炭20gを添加し再び2号ろ紙でろ過した。次に0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水200gをろ過液に添加して、40℃、0.0272kg/cm<sup>2</sup>でエタノールを留去し、イオン交換水でカテキン類濃度

を調整して製品を得た。

処理後の非重合体カテキン類は22重量%含有。

処理後の非重合体カテキン類／カフェイン重量比＝33.0

処理後のガレート体率51重量%

[0074] 実施例2 低カフェイン緑茶抽出物B

緑茶抽出物(ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製)100gを常温、250r/min攪拌条件下の70%エタノール水溶液100g中に分散させ、活性炭クラレコールGLC(クラレケミカル社製)25gと酸性白土ミズカエース#600(水澤化学社製)30gを投入後、約10分間攪拌を続けた。次に95%エタノール水溶液800gを30分かけて滴下した後、室温のまま30分間の攪拌を続けた。その後、再び2号ろ紙でろ過し、続けて0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水200gをろ過液に添加して、40℃、0.0272kg/cm<sup>2</sup>でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して所望の製品を得た。

処理後の非重合体カテキン類は22重量%含有。

処理後の非重合体カテキン類／カフェイン重量比＝59.5

処理後のガレート体率51.2重量%

[0075] 比較例1

緑茶抽出物としてポリフェノンHG(東京フードテクノ社製)100gを常温、250r/min攪拌条件下の水900g中に分散させ、酸性白土ミズカエース#600(水澤化学社製)100gを投入後、約20分間攪拌を続けた。その後、室温のまま約30分間の攪拌処理を続けた。その後、2号ろ紙でろ過したのちに0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後に実施例1と同等の非重合体カテキン類濃度になるまで、乾燥機で徐々に水分を蒸発させ製品を得た。

処理後の非重合体カテキン類は22重量%含有。

処理後の非重合体カテキン類／カフェイン重量比＝23.6

処理後のガレート体率49.6重量%

[0076] 比較例2

緑茶抽出物としてポリフェノンHG(東京フードテクノ社製)100gを常温、250r/min

n攪拌条件下の水900g中に分散させ、活性炭クラレコールGLC(クラレケミカル社製)20gと酸性白土ミズカエース#600(水澤化学社製)100gを投入後、約20分間攪拌を続けた。その後、室温のまま約30分間の攪拌処理を続けた。その後、2号ろ紙でろ過したのちに0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後に実施例1と同等の非重合体カテキン類濃度になるまで、乾燥機で徐々に水分を蒸発させ製品を得た。

処理後の非重合体カテキン類は22重量%含有。

処理後の非重合体カテキン類/カフェイン重量比=42.6

処理後のガレート体率47.6重量%

[0077] 表1に示すように有機溶媒の非常に高い水溶液を使用しつつ、活性炭と酸性白土を併用することにより、非重合体カテキン類のガレート体率やガロ体率を変化させることなく、カフェインを低減し、色相や良く安定性の良好な精製緑茶抽出物を製造できる。

[0078] [表1]

	本 発 明		比 較	
	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2
固体の緑茶抽出物 (g) <sup>1)</sup>	200	100	100	100
エタノール (g)	760	830	0	0
水 (g)	40	70	900	900
活性炭 (g) <sup>2)</sup>	20	25	0	20
酸性白土 (g) <sup>3)</sup>	100	30	100	100
有機溶媒/水 (重量比)	95/5	92/8	0/100	0/100
処理後の非重合体カテキン類 (重量%) <sup>4)</sup>				
GC	6.26	6.25	6.75	7.42
EGC	29.71	29.72	31.75	34.72
C	2.00	1.92	2.22	2.02
EC	9.92	10.01	9.64	8.24
EGCg	37.65	37.65	35.93	35.86
GCg	1.26	1.23	1.39	1.47
ECg	12.14	12.19	11.34	9.61
C	1.08	1.02	0.94	0.66
処理後の非重合体カテキン類/カフェイン(重量比)	33.0	59.5	23.6	42.6
処理後の非重合体カテキン類中における ガレート体率 (重量%)	51.0	51.2	49.6	47.6
処理後の非重合体カテキン類中における ガロ体率 (重量%)	74.9	73.5	75.8	79.5
処理後の固形分中における 非重合体カテキン類濃度 (重量%)	66	64	34	34
吸光度 (-)	0.038	0.031	0.535	0.270
精製品の評価	カフェイン が低減され 色相もよい、 目視による安定性 良好	カフェイン が低減され 色相もよい、 目視による安定性 良好	色相悪化 沈殿物発生	色相悪化 沈殿物発生

[0079] (注) 1) ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製

2) クラレコールGLC、クラレケミカル社製

3) ミズカエース#600、水澤化学社製

4) ポリフェノンHG製剤の非重合体カテキン類組成

GC(ガロカテキン)6.39重量%、EGC(エピガロカテキン)29.

42重量%、C(カテキン)2.16重量%、EC(エピカテキン)10.

3重量%、EGCg(エピガロカテキンガレート)37.13重量%、GC

g(ガロカテキンガレート)1.93重量%、ECg(エピカテキンガレー

ト)11.89重量%、Cg(カテキンガレート)0.79重量%、ガレー

ト体率51.73重量%、ガロ体率74.88重量%

[0080] 実施例3 容器詰飲料

表1に示した緑茶抽出物を配合し、表2に記載の成分を加えた後、イオン交換水でメスアップし調合液を調製した。食品衛生法に基づく殺菌工程、ならびにホットパック充填を行い、容器詰飲料とした。

[0081] なお、緑茶抽出物Cは以下の組成であった。

緑茶抽出物C

カフェイン含有カテキン類組成物(ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製)

非重合体カテキン類含有量33.70重量%、カフェイン含有量5.5重量%、非重合体カテキン類/カフェイン=6.1、ガレート体率51重量%。

[0082] 飲用直後のキレの評価は5名の男性モニターを用い、飲料350mLを単回摂取してもらい、以下の基準で評価点をつけた。

[0083] 5:キレが非常に良い

4:キレが良い

3:キレがやや良い

2:キレがやや悪い

1:キレが悪い

[0084] [表2]

配合	本発明品		比較品
	1	2	1
低カフェイン緑茶抽出物A	1. 0 0	—	—
低カフェイン緑茶抽出物B	—	1. 0 0	—
緑茶抽出物C	—	—	0. 6 5
酸化防止剤	0. 0 3	0. 0 3	0. 0 3
酸味料	0. 3 0	0. 3 0	0. 3 0
甘味料	5. 0 0	5. 0 0	5. 0 0
果汁	0. 0 5	0. 0 5	0. 0 5
イオン交換水	バランス	バランス	バランス
総量	1 0 0	1 0 0	1 0 0
飲料のpH	3. 5	3. 5	3. 6
非重合体カテキン類(重量%)	0. 2 2	0. 2 2	0. 2 2
非重合体カテキン類/カフェイン比	3 3	5 9. 5	6. 1
飲用直後のキレ	4	5	1

[0085] 表2の結果から明らかなように、本発明により緑茶抽出物进行处理することにより、カテキン類組成を維持したまま、カフェインを選択的に除去した低カフェイン緑茶抽出物を使用することにより、飲用直後のキレが際立って良くなった容器詰飲料を得ることができる。

#### [0086] 実施例4

表3に示す成分を混合して、所定の後処理を行い、実施例3と同様にして容器詰飲料を製造した。

[0087] なお、緑茶抽出物Dは、次法に従って製造した。

#### 緑茶抽出物D

カフェイン含有カテキン類組成物(ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製)100gを常温、250r/min攪拌条件下の95%エタノール水溶液490.9g中に懸濁させ、活性炭クラレコールGLC(クラレケミカル社製)25gと酸性白土ミズカエース#600(水澤化学社製)30gを投入後、約10分間攪拌を続けた。そして40%エタノール水溶液409.1gを10分間かけて滴下したのち、室温のまま約30分間の攪拌処理を続けた。その後、2号ろ紙で活性炭及び沈殿物をろ過したのちに0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水200gをろ過液に添加して、40℃、0.0272kg/cm<sup>2</sup>でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して所望の製品を得た。

処理後の非重合体カテキン類は22重量%含有。

処理後の非重合体カテキン類／カフェイン重量比＝20.0

処理後のガレート体率51重量%

[0088] 本発明の飲料が長期間の飲用に適したものであるか評価を実施した。10名のモニターを用いて1日に500mLの飲用を21日間続け、以下の基準評価点をつけた。

- [0089] A 適している  
B やや適している  
C やや飲用しづらい  
D 飲用に適さない

[0090] 飲用直後のキレの評価は10名の男性モニターを用い、飲料500mLを単回摂取してもらい、以下の基準で評価点をつけた。

- [0091] A キレが良い  
B キレがやや良い  
C キレがやや悪い  
D キレが悪い

[0092] 評価結果を表3に示す。

[0093] [表3]

配合	本発明品			比較品			
	3	4	5	2	3	4	5
低カフェイン緑茶抽出物A	1.00	2.00	0.50	5.00	0.1	—	—
緑茶抽出物C	—	—	—	—	—	—	0.65
緑茶抽出物D	—	—	—	—	—	1.00	—
酸化防止剤	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
酸味料	0.30	0.30	—	0.30	0.30	0.30	0.30
pH調整剤	—	—	—	—	—	—	—
甘味料	5.00	5.00	—	5.00	5.00	5.00	5.00
ミネラル塩 (Na、K)	0.07	0.07	—	0.07	0.07	0.07	0.07
果汁	0.05	0.05	—	0.05	0.05	0.05	0.05
紅茶香料	—	—	0.1	—	—	—	—
イオン交換水	バランス	バランス	バランス	バランス	バランス	バランス	バランス
総量	100	100	100	100	100	100	100
飲料のpH	3.5	3.5	6.0	3.6	3.5	3.6	3.6
非重合体カテキン類 (重量%)	0.22	0.44	0.11	1.10	0.02	0.2	0.22
比重合体カテキン類 ／カフェイン比	33	33	33	33	33	22	6.1
長期間の飲用性	A	A	B	D	A	C	D
飲用直後のキレ	A	A	A	C	A	C	D

[0094] 表3の結果から明らかなように、本発明により緑茶抽出物を処理することにより、カテキン類組成を維持したまま、カフェインを選択的に除去した低カフェイン緑茶抽出物を使用することにより、長期間の飲用に適した、また、飲用直後のキレが際立って良くなった容器詰飲料を得ることができる。

[0095] 実施例5 精製緑茶抽出物E

酸性白土ミズカエース#600(水澤化学社製)100gを常温、400r/min攪拌条件下の92.4重量%エタノール水溶液800g中に分散させ、約10分間攪拌を行い、緑茶抽出物(ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製)200gを投入し、室温のまま約3時間の攪拌を続けた。

その後、2号ろ紙でろ過し、活性炭クラレコールGLC(クラレケミカル社製)20gと接触させ、続けて0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水200gをろ過液に添加して、40℃、0.0272kg/cm<sup>2</sup>でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して製品を得た。

酸性白土/非重合体カテキン類重量比率 1.5

処理後:非重合体カテキン類/(遊離アミノ酸+タンパク質) 17

[0096] 実施例6 精製緑茶抽出物F

酸性白土ミズカエース#600(水澤化学社製)100g、クエン酸6.0gを常温、400r/min攪拌条件下の92.4重量%エタノール水溶液800g中に分散させ、約10分間攪拌を行い、緑茶抽出物(ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製)200gを投入し、室温のまま約3時間の攪拌を続けた。

その後、2号ろ紙でろ過し、活性炭クラレコールGLC(クラレケミカル社製)20gと接触させ、続けて0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水200gをろ過液に添加して、40℃、0.0272kg/cm<sup>2</sup>でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して製品を得た。

クエン酸/非重合体カテキン類重量比率 0.08

処理後:非重合体カテキン類/(遊離アミノ酸+タンパク質) 18

[0097] 実施例7 精製緑茶抽出物G

酸性白土ミズカエース#600(水澤化学社製)100gを常温、400r/min攪拌条件



下の92.4重量%エタノール水溶液800g中に分散させ、約10分間攪拌を行い、緑茶抽出物(ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製)200gを投入し、室温のまま約3時間の攪拌を続け、40℃に昇温した後約3時間の攪拌を続けた。

その後、40℃のまま2号ろ紙でろ過した後、室温にて活性炭クラレコールGLC(クラレケミカル社製)20gと接触させ、続けて0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水200gをろ過液に添加して、40℃、0.0272kg/cm<sup>2</sup>でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して製品を得た。

処理後:非重合体カテキン類/(遊離アミノ酸+タンパク質) 20

[0098] 実施例8 精製緑茶抽出物H

酸性白土ミズカエース#600(水澤化学社製)100g、クエン酸6.0gを常温、400r/min攪拌条件下の92.4重量%エタノール水溶液800g中に分散させ、約10分間攪拌を行い、緑茶抽出物(ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製)200gを投入し、室温のまま約3時間の攪拌を続け、40℃に昇温した後約3時間の攪拌を続けた。

その後、40℃のまま2号ろ紙でろ過した後、室温にて活性炭クラレコールGLC(クラレケミカル社製)20gと接触させ、続けて0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後にイオン交換水200gをろ過液に添加して、40℃、0.0272kg/cm<sup>2</sup>でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して製品を得た。

処理後:非重合体カテキン類/(遊離アミノ酸+タンパク質) 19

[0099] 比較例3

緑茶抽出物(ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製)200gを常温、250r/min攪拌条件下の水900g中に分散させ、活性炭クラレコールGLC(クラレケミカル社製)40gと酸性白土ミズカエース#600(水澤化学社製)200gを投入後、約20分間攪拌を続けた。その後、室温のまま約30分間の攪拌処理を続けた。その後、2号ろ紙でろ過したのちに0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再ろ過を行った。最後に実施例1と同等の非重合体カテキン類濃度になるまで、乾燥機で徐々に水分を蒸発させ製品を得た。

[0100] 実施例5～8及び比較例3の製造条件及び得られた緑茶抽出物の分析結果を、表4に示す。

[0101] [表4]

	本 発 明				比較
	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	比較例 3
固体の緑茶抽出物 (g)	200	200	200	200	200
エタノール (g)	739.2	739.2	739.2	739.2	0
水 (g)	60.8	60.8	60.8	60.8	900
活性炭 (g)	20	20	20	20	40
酸性白土 (g)	100	100	100	100	200
有機酸 (g)	0	5.6	0	5.6	0
有機溶媒/水 (重量比)	92/8	92/8	92/8	92/8	0/100
溶解温度 (°C)	25	25	25→40	25→40	25
混合液の pH	5.8	4.6	4.8	4.7	6.5
処理後の非重合体カテキン類 (重量%)					
GC	5.55	4.95	6.04	5.92	7.42
EGC	26.03	23.81	28.33	28.45	34.72
C	2.84	2.62	3.09	3.13	2.02
EC	8.49	7.45	9.24	8.90	8.24
EGCg	35.47	32.61	38.60	38.97	35.86
GCg	1.14	0.96	1.24	1.14	1.47
ECg	11.50	10.43	12.51	12.47	9.61
Cg	0.88	0.86	0.96	1.03	0.66
処理後の非重合体カテキン類 /カフェイン (重量比)	29.6	30.4	32.2	36.4	42.6
処理後の非重合体カテキン類中 におけるガラート体率 (重量%)	53.3	53.5	53.3	53.6	47.6
処理後の非重合体カテキン類中 におけるガロ体率 (重量%)	74.3	74.8	74.2	74.5	79.5
処理後の固形分中における非重合体 カテキン類濃度 (重量%)	68	62	63	61	34
非重合体カテキン類の収率 (重量%)	68	70	74	75	76
精製品の評価	カフェインが低減され、色相も良く、目視による安定性良好	カフェインが低減され、色相も良く、目視による安定性良好	カフェインが低減され、色相も良く、目視による安定性良好	カフェインが低減され、色相もやや良く、目視による安定性良好	色相悪化し、沈殿物発生

[0102] ※収率 精製緑茶抽出物中の非重合体カテキン類量の原料とした緑茶抽出物中の非重合体カテキン類量に対する比率(重量%)

※ポリフェノンHG製剤の非重合体カテキン類組成

GC(ガロカテキン)6.39重量%、EGC(エピガロカテキン)29.42重量%、C(カテキン)2.16重量%、EC(エピカテキン)10.3重量%、EGCg(エピガロカテキンガラート)37.13重量%、GCg(ガロカテキンガラート)1.93重量%、ECg(エピカテキンガラート)11.89重量%、Cg(カテキンガラート)0.79重量%、ガラート体率51.73重量%、ガロ体率74.88重量%。

[0103] 表4に示すように有機溶媒の非常に高い水溶液を使用しつつ、酸性白土を使用し

、特定のpH範囲で接触処理することにより、非重合体カテキン類のガレート体率やガロ体率を変化させることなく、カフェインを低減し、色相よく安定性の良好な精製緑茶抽出物を製造できる。

[0104] 実施例9

表4の精製緑茶抽出物を配合し、イオン交換水でメスアップし調合液を調製した。食品衛生法に基づく殺菌工程、ならびにホットパック充填を行い、容器詰飲料とした。

[0105] 飲用直後のキレの評価は5名の男性モニターを用い、飲料350mLを単回摂取してもらい、以下の基準で評価点をつけた。

[0106] 5:キレが非常に良い

4:キレが良い

3:キレがやや良い

2:キレがやや悪い

1:キレが悪い

[0107] [表5]

配 合	本発明品				比較品
	6	7	8	9	6
緑茶抽出物 (E)	1. 0 0				
緑茶抽出物 (F)		1. 0 0			
緑茶抽出物 (G)			1. 0 0		
緑茶抽出物 (H)				1. 0 0	
比較例3抽出物					1. 0 0
酸化防止剤	0. 0 3	0. 0 3	0. 0 3	0. 0 3	0. 0 3
酸味料	0. 3 0	0. 3 0	0. 3 0	0. 3 0	0. 3 0
甘味料	5. 0 0	5. 0 0	5. 0 0	5. 0 0	5. 0 0
果汁	0. 0 5	0. 0 5	0. 0 5	0. 0 5	0. 0 5
イオン交換水	バランス	バランス	バランス	バランス	バランス
総量	1 0 0	1 0 0	1 0 0	1 0 0	1 0 0
飲料pH	3. 5	3. 4	3. 5	3. 5	3. 6
非重合体カテキン類 (重量%)	0. 2 2	0. 2 2	0. 2 2	0. 2 2	0. 2 2
非重合体カテキン類/カフェイン	2 9. 6	3 0. 4	3 2. 2	3 6. 4	4 2. 6
飲用直後のキレ	4	3	4	3	1

[0108] 表5の結果から明らかなように、本発明により緑茶抽出物を処理することにより、カテキン類組成を維持したまま、カフェインを選択的に除去した本発明品を使用することにより、飲用直後のキレが際立って良くなった容器詰飲料を得ることができる。

[0109] 実施例10 低カフェイン緑茶抽出物I

緑茶葉(スリランカ産蒸茶葉)100gを、80%エタノール水36.5gと均一に混合し、5℃で15時間湿潤させた。湿潤した緑茶葉を、半回分式超臨界二酸化炭素抽出装置に仕込み、30MPa、70℃の条件下80%エタノール水を2%含む二酸化炭素で6時間処理した。このとき処理に用いた二酸化炭素量は14kgであった。処理後、抽出残渣を減圧下40℃で乾燥し、超臨界二酸化炭素処理緑茶葉92gを得た。本緑茶葉をイオン交換水10Lで、92℃、1時間の抽出を行い、濾過にて抽出液を得た。本抽出液を凍結乾燥し、緑茶抽出物40gを得た。抽出物中の非重合体カテキン類含有量は48重量%、カフェイン含有量は2.2重量%、非重合体カテキン類/カフェイン重量比率は22であった。

次にここで得た緑茶抽出物20gを常温、250r/min攪拌条件下の95%エタノール水溶液98.18g中に懸濁させ、活性炭(クラレコールGLC、クラレケミカル社製)4gと酸性白土(ミズカエース#600、水澤化学社製)20gを投入後、約10分間攪拌を続けた。そして40%エタノール水溶液82gを10分間かけて滴下したのち、室温のまま約40分間攪拌した。その後、2号濾紙で活性炭及び沈殿物を濾過したのち、0.2μmメンブランフィルターによって再濾過を行った。最後にイオン交換水40gを濾過液に添加し、40℃、 $3.4 \times 10^{-3}$ MPaでエタノールを留去し、製品を得た。製品中の非重合体カテキン量は263mg/100mL、カフェイン量は4.3mg/100mL、非重合体カテキン類/カフェイン重量比率は61であった。

[0110] [表6]

		実施例 10
緑茶葉の湿潤工程	緑茶葉仕込み量 (g)	100
	湿潤溶媒	80%エタノール水溶液
	湿潤溶媒量 (g)	36.5
超臨界二酸化炭素 処理工程	抽出圧力 (MPa)	30
	抽出温度 (°C)	70
	抽出時間 (h)	6
	添加溶媒	80%エタノール水溶液
	添加溶媒量 (重量%)	2
	処理後茶葉回収量 (g)	92
緑茶抽出物の 抽出工程	抽出溶媒	イオン交換水
	抽出溶媒量 (L)	10
	抽出物量 (g)	40

## [0111] 実施例11

実施例10で得られた茶抽出物を用いて表7記載の柑橘系フレーバー容器詰飲料を製造した。得られた飲料について、8名の男性パネラーに飲用してもらい、下記の5項目について評価を行った。結果を表7に示す。

## [0112] 評価項目

茶風味(5段階評価):

- 1 弱い
- 2 やや弱い
- 3 どちらともいえない
- 4 やや強い
- 5 強い

柑橘系風味(5段階評価):

- 1 弱い
- 2 やや弱い
- 3 どちらともいえない
- 4 やや強い

## 5 強い

嗜好性評価(5段階評価):

- 1 おいしくない
- 2 ややおいしくない
- 3 どちらともいえない
- 4 ややおいしい
- 5 おいしい

高温保存時の風味変化(3段階評価):

- A 変化なし
- B やや変化あり
- C 変化あり

[0113] [表7]

配合成分		本発明品 10
飲料組成	超臨界処理品* <sup>1</sup>	460
	人工甘味料* <sup>2</sup>	8
	酸味料	2.1
	アスコルビン酸	0.3
	NaCl	0.6
	KCl	0.4
	デキストリン類	5
	柑橘系果汁* <sup>3</sup>	2
	柑橘系フレーバー* <sup>4</sup>	5.5
	イオン交換水	バランス
	合計	1000
	飲料中の非重合体カテキン類(重量%)	0.12
	飲料中の非重合体カテキン類/カフェイン比(ー)	61
評価結果	茶風味	1
	柑橘系風味	5
	嗜好性評価	5
	高温保存時の風味変化(37℃-3ヶ月保存品)	A

\*1: 実施例10の緑茶抽出物

\*2: スクラロース

\*3: グレープフルーツ

\*4: グレープフルーツ

[0114] 表7より、超臨界抽出残渣茶葉からの抽出物を用いて精製した低カフェイン緑茶抽出物を用いた本発明容器詰飲料は、茶風味が極めて低減しており、配合した柑橘系風味が感じられ、かつ高温保存後に出てきてしまう緑茶由来も風味が感じられず風

味変化が抑制されていた。

## 請求の範囲

- [1] 緑茶抽出物を、有機溶媒と水の重量比が91/9-97/3の混合溶液と、活性炭及び酸性白土又は活性白土とを接触させる方法によって得られた低カフェイン緑茶抽出物を配合した、非重合体カテキン類を0.03-1.0重量%含有する容器詰飲料。
- [2] 緑茶抽出物が酸性白土又は活性白土と接触するときのpHが4-6である請求項1記載の容器詰飲料。
- [3] 低カフェイン緑茶抽出物が、緑茶抽出物を有機溶媒と水の混合溶液に溶解させ、活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触させて得られたものである請求項1又は2記載の容器詰飲料。
- [4] 低カフェイン緑茶抽出物が、有機溶媒と水の混合溶液に、活性炭及び酸性白土又は活性白土を分散させた分散液と、緑茶抽出物とを接触させて得られたものである請求項1又は2記載の容器詰飲料。
- [5] 有機溶媒が、エタノールである請求項1-4のいずれか1項記載の容器詰飲料。
- [6] 原料緑茶抽出物が、超臨界状態の二酸化炭素接触処理を施したCamellia属茶葉から抽出した茶抽出物である請求項1-5のいずれか1項記載の容器詰飲料。
- [7] pHが2-6である請求項1-6のいずれか1項記載の容器詰飲料。
- [8] 容器詰非茶系飲料である請求項1-7のいずれか1項記載の容器詰飲料。
- [9] 透明容器入りの飲料である請求項1-8のいずれか1項記載の容器詰飲料。
- [10] 甘味料を0.0001-20重量%含有する飲料である請求項1-9のいずれか1項記載の容器詰飲料。
- [11] 非重合体カテキン類/カフェイン重量比率が25-200含有する飲料である請求項1-10のいずれか1項記載の容器詰飲料。
- [12] 緑茶抽出物と、有機溶媒と水の重量比が91/9-97/3の混合溶液と、活性炭及び酸性白土又は活性白土とを接触させて、抽出物の乾燥重量で非重合体カテキン類を25-90重量%含有する低カフェイン緑茶抽出物の製造方法。
- [13] 緑茶抽出物と酸性白土又は活性白土と接触するときのpHを4-6に調整する請求項12記載の製造方法。
- [14] 緑茶抽出物を有機溶媒と水の混合溶液に溶解させ、活性炭及び酸性白土又は活



性白土と接触させる請求項12又は13記載の製造方法。

- [15] 有機溶媒と水の混合溶液に、活性炭及び酸性白土又は活性白土を分散させた分散液と、緑茶抽出物とを接触させる請求項12又は13記載の製造方法。
- [16] 酸性白土又は活性白土と緑茶抽出物とを接触させた後、次いで活性炭と接触させる請求項15記載の製造方法。
- [17] 有機溶媒が、エタノールである請求項12～16のいずれか1項記載の製造方法。
- [18] 原料緑茶抽出物が、超臨界状態の二酸化炭素接触処理を施したCamellia属の茶葉から抽出した茶抽出物である請求項12～17のいずれか1項記載の製造方法。
- [19] 低カフェイン緑茶抽出物の非重合体カテキン類／カフェイン重量比が25～200である請求項12～18記載の製造方法。
- [20] 低カフェイン緑茶抽出物の固形分中で、非重合体カテキン類を40～90重量%含有し、非重合体カテキン類／カフェイン重量比が25～200である低カフェイン緑茶抽出物。
- [21] 更に、非重合体カテキン類／(遊離アミノ酸＋タンパク質)重量比率が15～20である請求項20記載の低カフェイン緑茶抽出物。
- [22] 緑茶抽出物を、有機溶媒と水の重量比が91／9～97／3の混合溶液に分散させ、活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触させて、カフェイン含有カテキン類組成物から選択的にカフェインを除去する方法。
- [23] 酸性白土を、非重合体カテキン類との重量比率(酸性白土／非重合体カテキン類)が0.9～5.0となる範囲で用いる請求項16記載の製造方法。
- [24] 更に、有機酸を、非重合体カテキン類との重量比率(有機酸／非重合体カテキン類)が0.02～0.20となる範囲で用いる請求項15記載の製造方法。
- [25] 前記分散液に10～30℃で緑茶抽出物を接触させた後に、40～60℃に昇温する請求項15記載の製造方法。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/017875

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> A23F3/16, A23L2/00, A23K31/353, C07D311/62

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> A23F3/16, A23L2/00, A23K31/353, C07D311/62

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 6-142405 A (Taiyo Kagaku Co., Ltd.), 24 May, 1994 (24.05.94), (Family: none)	20, 21 1-19, 22-25
X A	JP 7-238078 A (Taiyo Kagaku Co., Ltd.), 12 September, 1995 (12.09.95), (Family: none)	20, 21 1-19, 22-25
X A	JP 10-67771 A (Nippon Yoryokuso Kabushiki Kaisha), 10 May, 1998 (10.05.98), (Family: none)	20, 21 1-19, 22-25
X A	JP 6-9607 A (Shokuhin Sangyo High Separation System Gijutsu Kumiai), 18 January, 1994 (18.01.94), (Family: none)	20, 21 1-19, 22-25

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
18 February, 2005 (18.02.05)Date of mailing of the international search report  
08 March, 2005 (08.03.05)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2004/017875

**C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, A	JP 2004-222719 A (Kao Corp.), 12 August, 2004 (12.08.04), & WO 04/37022 A	1-25

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>1</sup> A23F3/16 A23L2/00 A61K31/353 C07D311/62

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>1</sup> A23F3/16 A23L2/00 A61K31/353 C07D311/62

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 6-142405 A(太陽化学株式会社) 1994. 05. 24 (ファミリーなし)	20, 21
A		1-19, 22-25
X	JP 7-238078 A(太陽化学株式会社) 1995. 09. 12 (ファミリーなし)	20, 21
A		1-19, 22-25
X	JP 10-67771 A(日本葉緑素株式会社) 1998. 03. 10 (ファミリーなし)	20, 21
A		1-19, 22-25
X	JP 6-9607 A(食品産業ハイセパレーション・システム技術研究組合) 199	20, 21
A	4. 01. 18 (ファミリーなし)	1-19, 22-25
P, A	JP 2004-222719 A(花王株式会社) 2004. 08. 12 & WO 04/37022 A	1-25

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18. 02. 2005

国際調査報告の発送日

08. 3. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小石 真弓

4N

9727

電話番号 03-3581-1101 内線 3402